

This Page Is Inserted by IFW Operations  
and is not a part of the Official Record

## **BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images may include (but are not limited to):

- BLACK BORDERS
- TEXT CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- FADED TEXT
- ILLEGIBLE TEXT
- SKEWED/SLANTED IMAGES
- COLORED PHOTOS
- BLACK OR VERY BLACK AND WHITE DARK PHOTOS
- GRAY SCALE DOCUMENTS

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning documents *will not* correct images,  
please do not report the images to the  
Image Problems Mailbox.**

## PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

English Abstract  
of Document 1)

(11)Publication number : 07-296840

(43)Date of publication of application : 10.11.1995

(51)Int.Cl.

H01M 8/10

H01M 8/24

(21)Application number : 06-112203

(71)Applicant : NIPPON SOKEN INC

(22)Date of filing : 27.04.1994

(72)Inventor : OTA HISAYOSHI

OGATA IPPEI

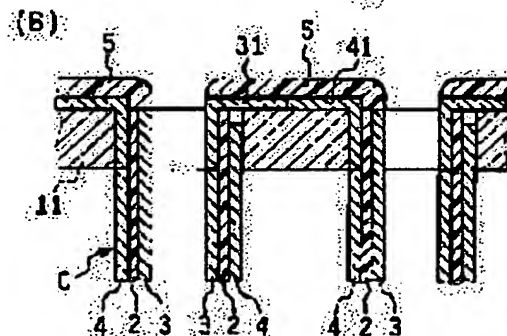
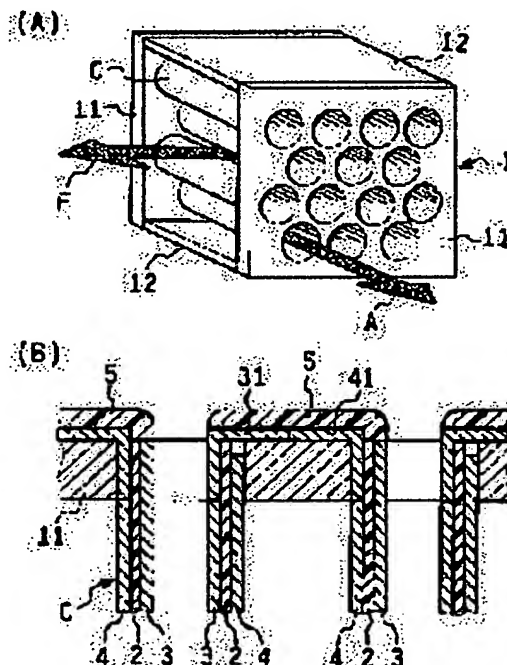
MAKINO TASUKE

## (54) POLYMER ELECTROLYTE FUEL CELL

## (57)Abstract:

**PURPOSE:** To facilitate manufacture by achieving simplification and weight reduction of a structure and to achieve a high output density by enhancing current density.

**CONSTITUTION:** A plurality of cylindrical unit cells C are arranged parallel to one another inside a frame 1, and each of the unit cells 1 comprises electrodes 3, 4 sandwiching a polymer electrolyte 2 and joined respectively to the inside and outside surfaces of the electrolyte 2. The internal space of each unit cell C serves as a passage for an oxidizing gas A, and the space outside the cells C forms a passage for fuel gas F, and power is generated by an oxidation reduction reaction between both electrodes 3, 4.



## LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

Copyright (C); 1998,2000 Japan Patent Office

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平7-296840

(43) 公開日 平成7年(1995)11月10日

(51) Int.Cl. <sup>6</sup>	識別記号	庁内整理番号	F I	技術表示箇所
H 0 1 M 8/10		9444-4K		
8/24	R	9444-4K		

審査請求 未請求 請求項の数9 F D (全 6 頁)

(21) 出願番号 特願平6-112203

(22) 出願日 平成6年(1994)4月27日

(71) 出願人 000004695

株式会社日本自動車部品総合研究所  
愛知県西尾市下羽角町岩谷14番地

(72) 発明者 太田 久喜

愛知県西尾市下羽角町岩谷14番地 株式会  
社日本自動車部品総合研究所内

(72) 発明者 緒方 逸平

愛知県西尾市下羽角町岩谷14番地 株式会  
社日本自動車部品総合研究所内

(72) 発明者 牧野 太輔

愛知県西尾市下羽角町岩谷14番地 株式会  
社日本自動車部品総合研究所内

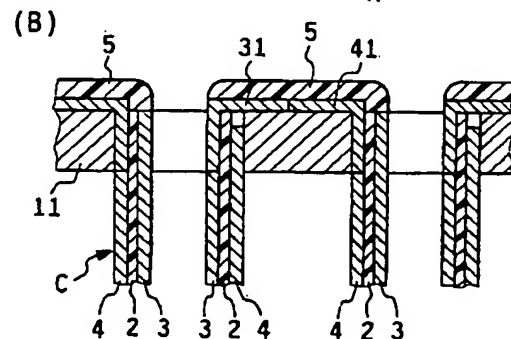
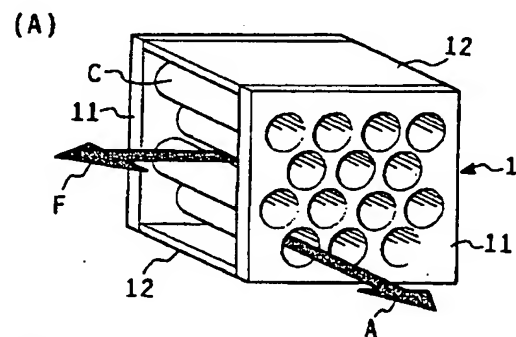
(74) 代理人 弁理士 伊藤 求馬

(54) 【発明の名称】 高分子電解質型燃料電池

(57) 【要約】

【目的】 構造の簡略化、軽量化を図って、製作を容易にするとともに、電流密度を向上させ、高い出力密度を実現することを目的とする。

【構成】 枠体1内に複数の筒状の単位セルCを平行配設してなり、単位セルCは、高分子電解質2を挟んでその内外表面に電極3、4を接合した構成を有する。単位セルCの内部空間は酸化性ガスA流路となり、外部空間は燃料ガスF流路を形成して、両電極3、4における酸化還元反応により発電する。



## 【特許請求の範囲】

【請求項 1】 高分子電解質を挟んでその両面に電極を配し、一方の電極に接して燃料ガス流路を設けるとともに、他方の電極に接して酸化性ガス流路を形成し、両電極における酸化還元反応により発電する燃料電池において、上記高分子電解質を筒状体として、その内表面および外表面に上記電極を接合した単位セルを少なくとも 1 以上設け、上記単位セルの内部空間を上記燃料ガスまたは酸化性ガスのいずれか一方のガス流路となすとともに、上記単位セルの外部空間を残る他方のガス流路となしたことを特徴とする高分子電解質型燃料電池。

【請求項 2】 上記単位セルの断面形状が円形またはこれに近似した形状であることを特徴とする請求項 1 記載の高分子電解質型燃料電池。

【請求項 3】 上記電極が、集電体表面に電極触媒を固着してなることを特徴とする請求項 1 または 2 記載の高分子電解質型燃料電池。

【請求項 4】 上記集電体の表面を、チタン、タンタル、金、または白金から選ばれる少なくとも 1 つの金属またはその化合物で被覆したことを特徴とする請求項 3 記載の高分子電解質型燃料電池。

【請求項 5】 上記高分子電解質が陽イオン交換膜であることを特徴とする請求項 1 ないし 4 記載の高分子電解質型燃料電池。

【請求項 6】 上記高分子電解質よりなる筒状体が、シート状の高分子電解質の端縁を、加熱溶着、溶剤溶着、または超音波溶着のいずれかを用いて接合してなることを特徴とする請求項 1 ないし 5 記載の高分子電解質型燃料電池。

【請求項 7】 上記高分子電解質よりなる筒状体が、シート状の高分子電解質の端縁を、樹脂系接着剤よりなる中間層を介して接合してなることを特徴とする請求項 1 ないし 5 記載の高分子電解質型燃料電池。

【請求項 8】 上記単位セルの両端部を支持板にて固定し、上記支持板には上記単位セル内に形成されるガス流路のガス導入口および排出口を設けたことを特徴とする請求項 1 ないし 7 記載の高分子電解質型燃料電池。

【請求項 9】 上記単位セルを複数設けて、これら単位セルをその端部にて端子を介して電気的に結合したことを特徴とする請求項 1 ないし 8 記載の高分子電解質型燃料電池。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【産業上の利用分野】 本発明は電解質として高分子電解質を用いた燃料電池に関する。

## 【0002】

【従来の技術】 燃料電池は、水素ガス等の酸化されやすい燃料ガスを、電解質を利用して電気化学的に反応させることにより、直接、電気エネルギーに変換する装置である。電解質としては種々の形態のものが使用可能であ

るが、そのうち固体電解質を用いたものが、装置の簡素化が容易であるなどの理由で注目されている。

【0003】 固体電解質として高分子電解質を用いた燃料電池の、一般的な構造を図 9 に示す。図中、C は高分子電解質 2 を空気電極 3 と燃料電極 4 にて挟持せしめてなる単位セルであり、この単位セル C と、セパレータ S とを交互に積層してセルスタック構造を形成している。上記セパレータ S は、その下面に複数のリブ S1 が平行に配してあり、隣接する空気電極 3 との間に複数の流路を形成して、この流路に空気 A が導入されるようになっている。また、上記セパレータ S の上面には同様の複数のリブ S2 が平行配設されて、隣接する上記燃料電極 4 との間に燃料ガス F の流路を形成している。

【0004】 そして、空気電極 3 側の流路には酸化剤として空気 A が、燃料電極 4 側の流路には水素に富む燃料ガス F がそれぞれ供給され、高分子電解質 2 のイオン導電性を利用して発電を行なう。なお、このセルスタックは接触抵抗を下げるため、通常、加圧されている。

## 【0005】

【発明が解決しようとする課題】 ところで、上記セパレータ S には、低抵抗であること、高耐食性を有すること等の特性が要求され、通常、チタンで構成されている。しかしながら、上記セパレータ S の総重量はセルスタックの重量の半分近くになり、このためセルスタックの重量当たりの出力密度を低下させる要因となっていた。また、空気 A および燃料ガス F の流路を形成する上記リブ S1、S2 は、隣合うリブ間の間隔が狭く、上下面に多数のリブを有するなど構造が複雑であるため、加工に手間がかかる。しかも、これらガス流路が狭く、複雑であるため、電極全体に均一にガスを供給することが困難で、空気電極 3 で生成する水の除去も容易ではない。このため電流密度を十分向上できないという不具合があった。

【0006】 本発明は上記実情に鑑みてなされたものであり、その目的は、構造の簡略化、軽量化を図って、製作を容易にするとともに、電流密度を向上させ、高い出力密度を実現することにある。

## 【0007】

【課題を解決するための手段】 本発明の構成を図 1 で説明すると、高分子電解質型燃料電池は高分子電解質 2 を挟んでその両面に電極 3、4 を配してなり、一方の電極 4 に接して燃料ガス F 流路を有するとともに、他方の電極 3 に接して酸化性ガス A 流路を形成し、両電極 3、4 における酸化還元反応により発電する。本発明では上記高分子電解質 2 を筒状体としてあり、その内表面および外表面に上記電極 3、4 を接合した単位セル C を少なくとも 1 以上設けて、上記単位セル C の内部空間を上記燃料ガス F または酸化性ガス A のいずれか一方のガス流路となす。そして、上記単位セル C の外部空間を残る他方のガス流路となすものである（請求項 1）。

【0008】上記単位セルCの断面形状は円形またはこれに近似した形状とする（請求項2）。上記電極3、4は、集電体7表面に電極触媒6を固着してなり（図3、請求項3）、上記集電体7の表面は、チタン、タンタル、金、または白金から選ばれる少なくとも1つの金属またはその化合物にて被覆してある（請求項4）。

【0009】上記高分子電解質2は陽イオン交換膜であることが望ましい（請求項5）。上記高分子電解質2よりなる筒状体は、高分子電解質を押し出成形等により円筒状に成形してなるものか、シート状の高分子電解質2の端縁を、加熱溶着、溶剤溶着、または超音波溶着のいずれかを用いて接合してなる（請求項6）。または、シート状の高分子電解質2の端縁を、樹脂系接着剤よりなる中間層21を介して接合してもよい（図6、請求項7）。上記単位セルCの両端部は支持板11にて固定してあり、上記支持板11には上記単位セルC内に形成されるガス流路のガス導入口および排出口を設ける（図1（A）、請求項8）。上記単位セルCは複数設けてもよく、これら単位セルCはその端部にて端子31、41を介して電氣的に結合される（図1（B）、請求項9）。 20

【0010】

【作用】上記構成によれば、高分子電解質2を筒状としてその内外をガス流路となしたので、従来不可欠であったセパレータSが不要となり、大幅な軽量化が可能となる。また、ガス流路が広くなり、ガスの均一な供給を可能にするとともに、生成水の除去も容易にできる。従って、電流密度が高まり、出力密度を大幅に向上させることが可能となる。

【0011】

【実施例】以下、本発明の実施例を図面に基づいて説明する。図1（A）は円筒型セルスタック構造を有する本発明の高分子電解質型燃料電池の全体構成図で、枠体1内には、円筒状に成形された複数の単位セルCが平行配設してあり、その両端部を、支持板たる上記枠体1の左右側板11にて支持せしめてある。

【0012】上記単位セルCは高分子電解質を挟んでその両側に電極を形成したもので、高分子電解質としては、ここでは水素イオン導電性を示すパーフロスルホン酸ポリマーを使用した。図1（B）に示すように、円筒形の高分子電解質2の内周面には空気電極（陽極）3が、外周面には燃料電極（陰極）4を設けてある。上記構成の単位セルCは、これを複数設けて上下左右はほぼ等間隔をおいて平行配設し（図1（A））、その両端を、上記枠体1の左右側板11に設けた円形の嵌合穴に挿通して固定する。

【0013】各単位セルCは、その端縁において隣合う単位セルCの陽極端子31と陰極端子41をそれぞれ接合してあり（図1（B））、これにより各単位セルCは電氣的に直列結合される。また、連結部の表面には上記端子31、41を覆う腐食防止用の樹脂層5が形成して

ある。

【0014】上記単位セルCの内部空間は酸化性ガスである空気Aの流路となり（図1（A））、上記側板11の嵌合穴は、上記単位セルC内に空気Aを供給するガス導入口または排出口となる。一方、上記単位セルCの外部空間は水素に富む燃料ガスFの流路を構成する。なお、これらガスの流れる方向は図のように直交している。かくして、上記両流路に空気Aおよび燃料ガスFを供給すると、燃料電極4で水素がイオン化して高分子電解質2内を移動し、空気電極3の酸素と反応して水を生成する。燃料電極4で発生する電子は外部回路を通じて空気電極3へ流れ、これを電気エネルギーとして取り出すことができる。

【0015】上記構造の燃料電池は以下のようにして製造される。図2には円筒型単位セルCの製造工程を示す。工程1において、まず、前処理として高分子電解質2の接合面をコロナ放電またはスパッタエッチングにより表面処理する。これにより、後工程において高分子電解質2の円筒化する際の接合強度を高めることができる。

【0016】次に工程2で電極と高分子電解質2の接合を行ない、図3に示す電極-高分子電解質接合セルを形成する。まず、導電性の炭素粉に、従来の湿式法により触媒を20重量%担持した電極触媒6とポリテトラフルオロエチレン（以下、PTFEと称する）を、PTFEが20～60重量%となるように混合する。電極触媒6に担持させる触媒としては、例えば白金、白金ニッケル合金等が挙げられる。次いでこの電極触媒6とPTFEの混合物を、チタンで表面処理したアルミニウム製の集電体7に塗布し、非酸化雰囲気中で300～360℃で熱処理を行なって空気電極3または燃料電極4となる電極32、42を形成する。集電体7は多孔体で、その内部表面に上記電極触媒6を保持する。また、上記集電体7はチタンにより表面処理したが、この他、タンタル、金、白金、またはこれらの化合物を用いてもよい。上記集電体7としては、アルミニウムの他、チタン、タンタル等を使用してもよい。触媒の担持法としては、この他にめっき、スパッタ等のPVD、CVD等による方法を用いてもよい。

【0017】この電極32、42の表面にパーフロスルホン酸ポリマー溶液であるナフィオン溶液（アルドリッチ・ケミカル製）を塗布、含浸させ、高分子電解質2であるパーフロスルホン酸ポリマーの膜（ナフィオン117：米国デュボン社製、商品名）の両面に配する。次いで30～50kg/cm<sup>2</sup>、120℃でホットプレスを行ない、電極-電解質接合セルを得る。

【0018】得られた電極-電解質接合セルは、空気電極3となる電極32が内側となるように、3本ロール成形機で円筒状に曲げ加工する（図2工程3）。そして、図4に示すように、高分子電解質2の両端縁を重ね合わ

せ、加熱加圧用の治具8を上下に配する。次いで、200℃で5～10分間ホットプレスを行なって熱融着により完全に接合する。これにより円筒型単位セルCが得られる。

【0019】次に、図5により円筒型セルスタックの製造工程を説明する。まず、工程1で上述のようにして得た円筒型単位セルCの両端部を、上記側板11に設けた嵌合穴に挿通して樹脂系接着剤で接着固定する。これにより単位セルCが2枚の側板11間に支持固定され、単位セルC両端にガス導入口および排出口が形成される。次いで、円筒型セルスタックの全体強度を確保するために、側板11の上下に支持板12を接合し、枠体1とする（工程2）。さらに、各単位セルCを電氣的に結合するため、上記側板11面上で隣接する各単位セルCの陽極端子31と陰極端子41を接合する（工程3）。接合した端子31、41の上面には腐食防止用の樹脂膜5を形成する（工程4）。かくして図1（A）の円筒型セルスタックが得られる。

【0020】上記実施例では、高分子電解質2としてパーフロスルホン酸ポリマーを用いたが、特にこれに限定されるものではなく、通常知られる高分子電解質のいずれを用いてもよい。例えばスチレン、ジビニルベンゼン共重合体系の陽イオン交換膜であるネオセブタCR-4（（株）トクヤマ製、商品名）を用いた場合には、同様の方法で電極-電解質接合セルを曲げ加工した後、接合部を重ね合わせ、120～150℃で5分間ホットプレスを行ない、熱融着することにより、円筒体とする。以下、同様にして円筒型セルスタックが得られる。

【0021】上記実施例では、電極-電解質接合セルの曲げ加工時に、高分子電解質2の両端縁を加熱溶着により接合したが、図6に示すように高分子電解質2の両端縁間に、中間材としてテトラフルオロエチレン-パーフロアルキルビニルエーテル共重合体（PFA）を配し、この中間層21を介して接合してもよい。ここではPFAとしてネオフロンPFA（ダイキン工業株式会社製、商品名）を用いた。その後、同様にホットプレスを行ない円筒体とする。PFAは高分子電解質2との密着性に優れる中間層21を形成し、接着性を向上させる。なお、PFAに限らず、他の樹脂系接着剤を使用してももちろんよい。

【0022】また、図7に示すように高分子電解質2の接合面22をs-ブタノールまたはt-アミノアルコール等の溶剤で溶かした後、接合部を重ね合わせ、高分子電解質2の上下にプレス板9を配し、20～50kg/cm<sup>2</sup>でプレスを行ない接合することとすることもできる。あるいは、図8に示すように接合部を重ね合わせる受治具と超音波振動を発生するホーンを備える超音波プラスチック

ウェルダを用いてもよい。この場合、高分子電解質2の上下に受治具10を配し、ホーン101で超音波振動を加えることにより接合する。

【0023】上記実施例では、単位セルC内部空間を酸化性ガス流路、単位セルC外部空間を燃料ガス流路としたが、単位セルC内部空間を燃料ガス流路、単位セルC外部空間を酸化性ガス流路としてももちろんよい。単位セルCの断面形状は円形に限らず、これに近似する形状であればよい。

【0024】

【発明の効果】本発明によれば、高分子電解質を筒状としてその内外をガス流路となしたので、セパレータが不要で、大幅に軽量化でき、製造も容易である。また、ガス流路が広く、ガスの均一な供給が可能で、生成水の除去も容易にできる。従って、電流密度が高まり、出力密度を大幅に向上させることができる。

【図面の簡単な説明】

【図1】本発明の一実施例を示し、図1（A）は高分子電解質型燃料電池の全体斜視図、（B）は図1（A）の部分拡大断面図である。

【図2】円筒型単位セルの製造工程を示す図である。

【図3】電極-高分子電解質接合セルの構造を示す図である。

【図4】円筒型単位セルの接合方法を示す図である。

【図5】円筒型セルスタックの製造工程を示す図である。

【図6】本発明の第2の実施例における円筒型単位セルの接合方法を示す図である。

【図7】本発明の第3の実施例における円筒型単位セルの接合方法を示す図である。

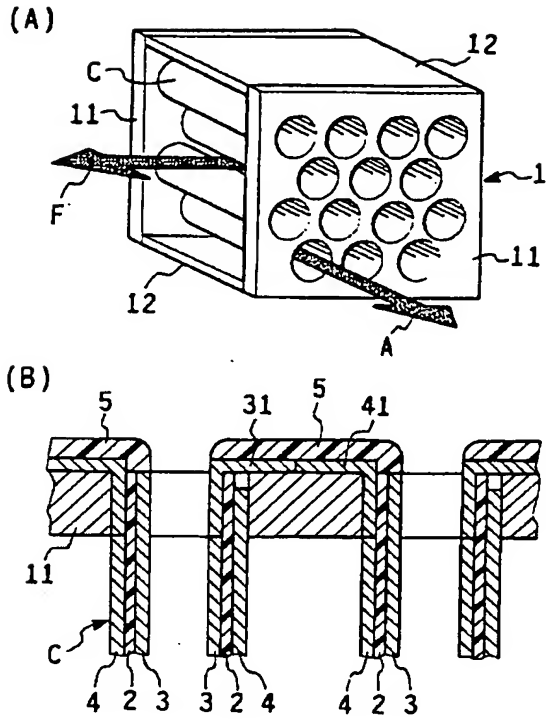
【図8】本発明の第4の実施例における円筒型単位セルの接合方法を示す図である。

【図9】従来の高分子電解質型燃料電池の部分分解斜視図である。

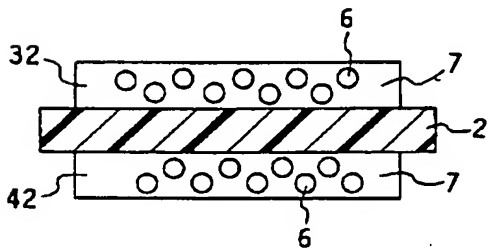
【符号の説明】

- C 単位セル
- A 空気（酸化性ガス）
- F 燃料ガス
- 1 枠体
- 11 側板（支持板）
- 2 高分子電解質
- 3 空気電極（電極）
- 4 燃料電極（電極）
- 31、41 端子
- 5 樹脂膜
- 6 電極触媒
- 7 集電体

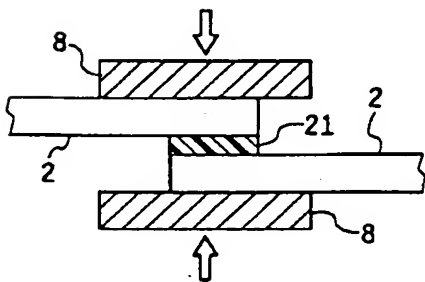
【図1】



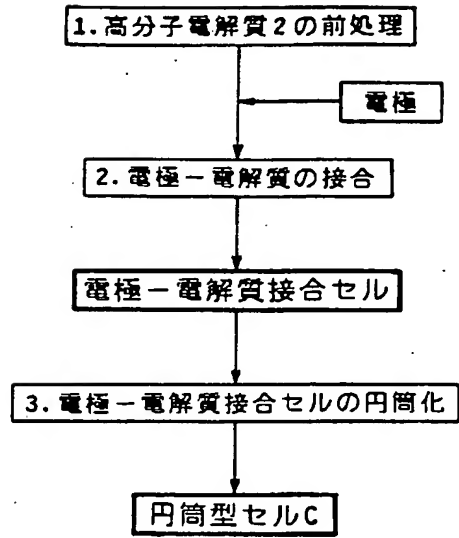
【図3】



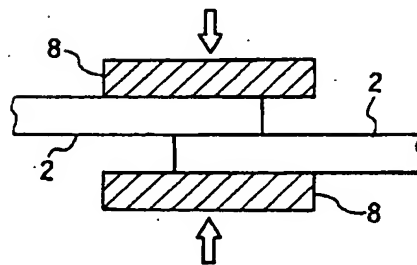
【図6】



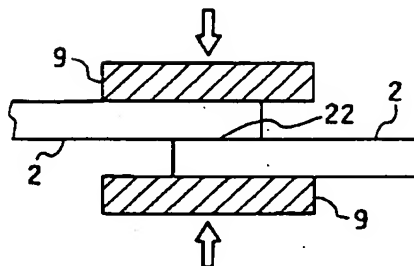
【図2】



【図4】

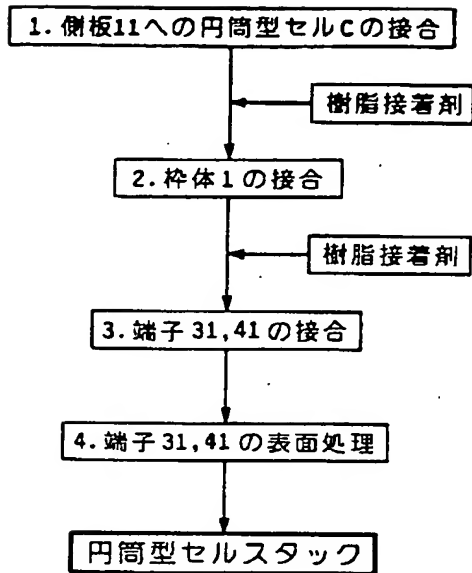


【図7】

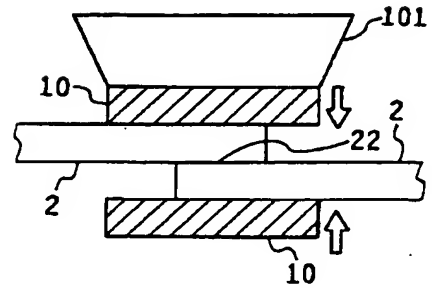




【図5】



【図8】



【図9】

